N° d'enregistrement
au C.N.R.S.
A.O. 1262

ARTICLE PRINCIPAL

recouvrant en partie

LA THESE DE DOCTORAT ES SCIENCES PHYSIQUES

présentée

A LA FACULTE DES SCIENCES

DE PARIS

par

Jean-Pierre DESCOUBES

pour obtenir

le grade de Docteur ès Sciences

SUJET DE LA THESE : "Mesure, par la méthode des croisements de niveaux, de structures d'états atomiques de ^4He et ^3He excités par bombardement électronique transversal".

soutenue le 4 Mars 1967 devant la Commission d'Examen :

MM. A. KASTLER, Président
P. JACQUINOT
J. BROSSEL
J.C. PEBAY-PEYROULA
} Examinateurs

MESURE, PAR CROISEMENTS DE NIVEAUX, DE STRUCTURES DES ATOMES ^4He ET ^3He EXCITÉS PAR CHOC ÉLECTRONIQUE

J. P. DESCOUBES, Mme C. GALLERON et Mlle M. MAUJEAN

Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure, Paris (France)

Nous allons dans cet exposé continuer l'étude de l'excitation électronique considérée comme un outil de spectroscopie atomique.

Les méthodes habituelles de spectroscopie optique consistent en l'emploi d'appareils à haute résolution. Elles ont trois défauts. Le premier, de nature technologique, réside dans la difficulté et la complexité des mesures. Le second, de nature physique, est que l'élargissement Doppler des raies spectrales limite sévèrement le pouvoir séparateur de l'appareillage. Enfin, la détermination des structures de niveaux à partir d'une forme complexe de raies plus ou moins mélangées est difficile ou ambiguë [1].

En spectroscopie hertzienne, on utilise en général des techniques plus simples. Elles sont insensibles à l'effet Doppler [2]. Cependant, l'interprétation des résultats est le plus souvent tout aussi difficile et ambiguë qu'en optique, pour ce qui concerne les déterminations de structure. Toutefois, la méthode dite des croisements de niveaux n'a pas cet inconvénient. Associée à l'excitation électronique, elle permet d'étudier un grand nombre d'états atomiques excités moyennant certaines conditions.

Nous allons d'abord rappeler le principe de l'expérience de croisements de niveaux. Puis nous donnerons quelques indications sur les conditions de l'excitation électronique. Nous parlerons alors brièvement de la méthode expérimentale. Nous terminerons enfin par un rapport des résultats et des conclusions obtenus.

I - CROISEMENTS DE NIVEAUX

1/ **Expérience de Franken** [3]

Une cellule remplie d'He est placée dans un champ magnétique $\vec{H}_0$ statique (figure 1). Une légère décharge excite les atomes de l'état $1\,^1S_0$ à l'état métastable $2\,^3S_1$. Une lampe à He illumine la cellule à l'aide de la raie 1μ convenablement polarisée, s'il y a lieu, par un polariseur qui ne laisse passer que la composante de vecteur électrique $\vec{e}_{\lambda_0}$. Les atomes sont alors transférés dans l'état $2\,^3P$ d'où ils retombent par

UNIV. LEIDEN BIBL.

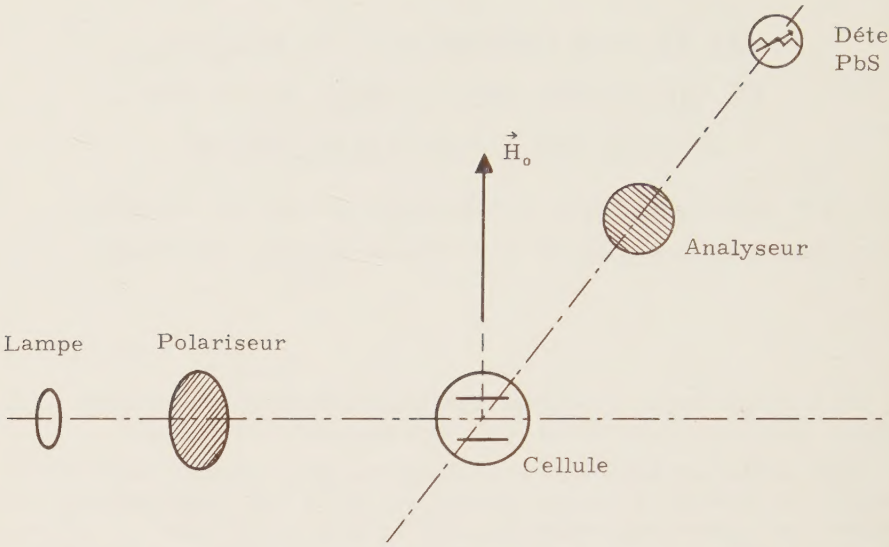


Figure 1 - Expérience de Franken.

émission spontanée. La raie de fluorescence est reçue sur une cellule à sulfure de plomb, après passage, le cas échéant, à travers un analyseur qui ne laisse passer que la composante de vecteur électrique $\vec{e}_\lambda$.

La figure 2 représente le diagramme Zeeman des états $2\,^3P$ de ^4He. On y voit que, pour certaines valeurs de H_0, certains sous-niveaux Zeeman ont la même énergie.

Lorsque H_0 varie en grandeur autour de ces valeurs, l'intensité reçue par la cellule à SPb peut varier brusquement, de manière résonnante. Sa courbe de variation dépend de $\vec{e}_{\lambda_0}$ et $\vec{e}_\lambda$, comme on peut le voir dans le tableau I.

Tableau I

Excitation / angle $(\vec{e}_{\lambda_0}, \vec{H})$ — Détection $(\vec{e}_\lambda, \vec{H})$	0°	45°	90°
0°	Rien	Rien	Rien
45°	Rien	$\Delta M = 1$: max. $\Delta M = 2$: $\frac{1}{2}$ × max	$\Delta M = 2$ seulement
90°	Rien	$\Delta M = 2$ seulement	$\Delta M = 2$ seulement maximum

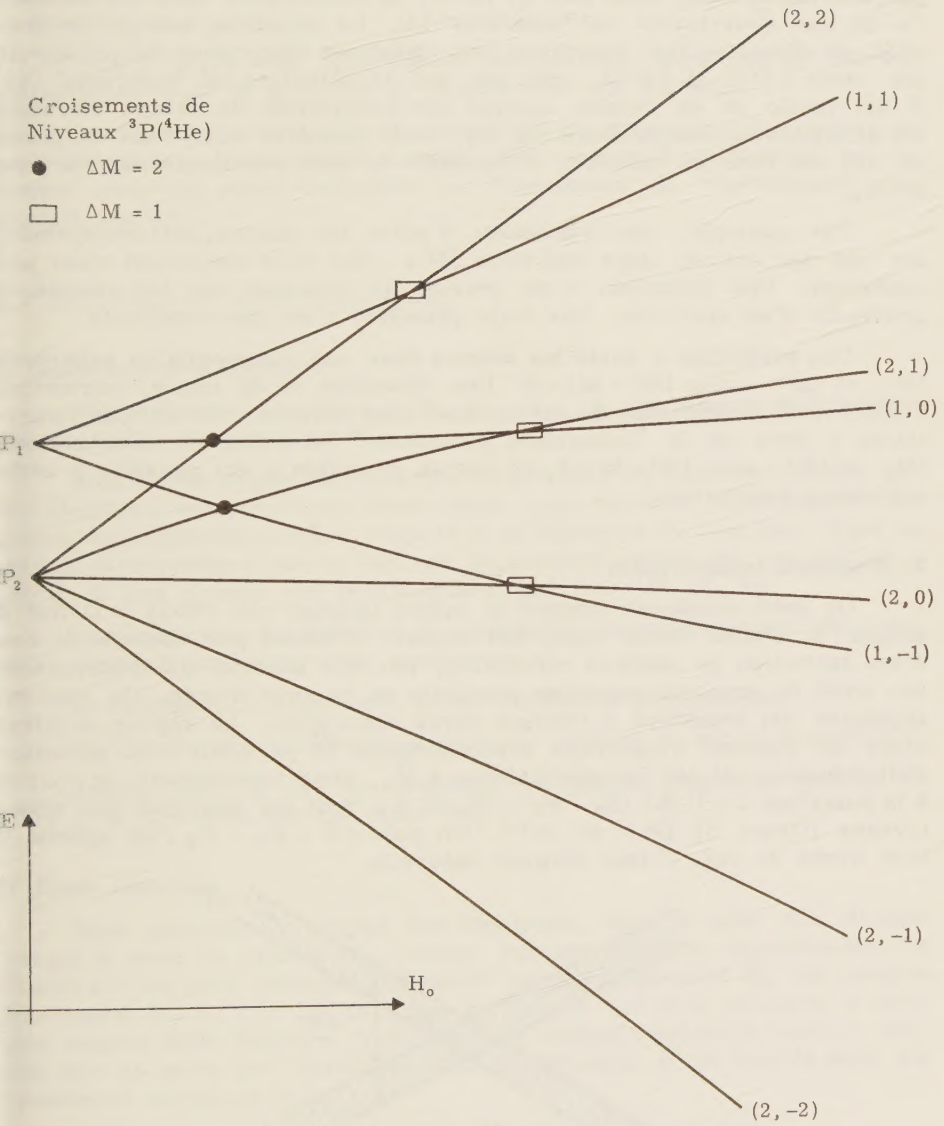


Figure 2 - Croisements de niveaux ^3P (^4He).

2/ Conditions de succés

Les expériences dont le résultat est positif ont deux caractères communs. Le premier est que les atomes sont excités dans une superposition linéaire des états $|M>$ et $|M'>$, la même pour tous les atomes. On dit que l'*excitation est "cohérente"* [4]. Le deuxième est que le procédé de détection fait interférer les vibrations électriques émises depuis les états $|M>$ et $|M'>$. On dit que la *détection est "cohérente"* [4]. Il est facile de se rendre compte que l'amplitude de chaque vibration est sensiblement indépendante de H_0, mais que leur différence de phase en est une fonction linéaire. L'intensité de leur résultante dépend donc de H_0.

Par exemple, une excitation π porte les atomes, indépendamment les uns des autres, dans des états $|M>$. Une telle excitation n'est pas cohérente. Une détection π ne permet de recevoir que les vibrations provenant d'un seul état. Une telle détection n'est pas cohérente.

Une excitation σ porte les atomes dans une superposition cohérente $|M>$ et $|M'>$ avec $|M' - M| = 2$. Une détection σ, de même, permettra d'observer l'interférence de ces mêmes sous-niveaux. On dit que l'excitation σ crée de la "cohérence hertzienne" [4] entre les sous-niveaux $|M>$ et $|M'>$ avec $|M' - M| = 2$, et que la détection σ est sensible à cette cohérence hertzienne.

3/ Grandeurs transversales

On peut employer encore le même langage que Pébay a utilisé à propos de l'effet Hanle dans son exposé. Prenons par exemple le cas d'une excitation en lumière circulaire, par des photons qui transportent une unité de moment angulaire parallèle au vecteur d'onde. Ce moment angulaire est transféré à l'atome après absorption. La vapeur acquiert alors un moment magnétique macroscopique $\vec{\mathfrak{M}}$ parallèle à la direction d'illumination ; il est perpendiculaire à $\vec{H}_0$, donc transversal, et tourne à la pulsation $\omega = (1/\hbar)(E_M - E_{M'})$. E_M et $E_{M'}$ sont les énergies des sous-niveaux (figure 3) $|M>$ et $|M'>$. On pose $\Delta E = E_{M'} - E_M$; on appelle τ leur durée de vie, Γ leur largeur naturelle.

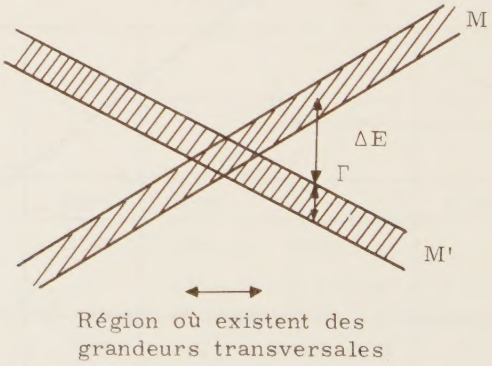


Figure 3 - Croisement de niveaux.

Si $\omega\tau \gg 2\pi$ ($\Delta E \gg \Gamma$), $\vec{\mathfrak{M}}$ fait plusieurs tours, et $\langle \mathfrak{M}_T \rangle = 0$ [1]. Si $\ll 2\pi$ ($\Delta E \ll \Gamma$), $\vec{\mathfrak{M}}$ est pratiquement immobile et $\langle \mathfrak{M}_T \rangle \neq 0$, si du oins on avait immédiatement après l'excitation $\langle \mathfrak{M}_T \rangle \neq 0$. La répar- tion spatiale de la lumière de fluorescence dépend de $\mathfrak{M}$, donc varie n fonction de H_0.

Dans d'autres cas, la grandeur transversale n'est pas un moment agnétique, mais le principe de l'explication est inchangé.

En résumé, nous voyons la possibilité de déterminer les points de roisement des diagrammes Zeeman des niveaux P en étudiant par un imple procédé photo-électrique le diagramme de rayonnement des omes excités.

- EXCITATION ELECTRONIQUE

/ Conditions d'utilisation

Afin d'étudier les niveaux P, D, etc., il est indiqué de procéder ar excitation électronique.

Nous avons vu par ailleurs que l'excitation de certains atomes par es électrons monocinétiques lents induit dans certains états excités des randeurs longitudinales par rapport à la direction du faisceau. Ceci se raduit physiquement par le fait que la lumière émise par les atomes à artir de ces niveaux est partiellement polarisée [5, 6, 7].

Les conditions de création de grandeurs macroscopiques transver- ales apparaissent alors très clairement :

a) Existence d'alignement après excitation électronique.

b) Vitesse des électrons oblique par rapport au champ magnétique.

Ainsi, dans le cas de l'hélium, on pourra peut-être étudier les tats P et D, mais non les états S [6].

/ Etude théorique

Nous prenons $\vec{v}$, vitesse des électrons, dans le plan zOx, faisant 'angle θ avec le champ $\vec{H}_0$, dirigé suivant l'axe de quantification Oz figure 4). On peut calculer l'intensité de la composante $\vec{e}_\lambda$, de cosinus irecteurs (α, β, γ). Le prinçipe du calcul est très analogue à celui u'a exposé Mlle Nédélec. Fondé sur le formalisme de la matrice den- ité mis au point par Barrat et Cohen-Tannoudji, il est valable dans les ypothèses suivantes [4] :

a) L'état fondamental est peu affecté par l'excitation.

b) Les électrons incidents forment des paquets d'ondes dont la largeur est $\gg \Gamma$.

---

(1) $\mathfrak{M}_T$ est la composante transversale du moment magnétique macroscopique.

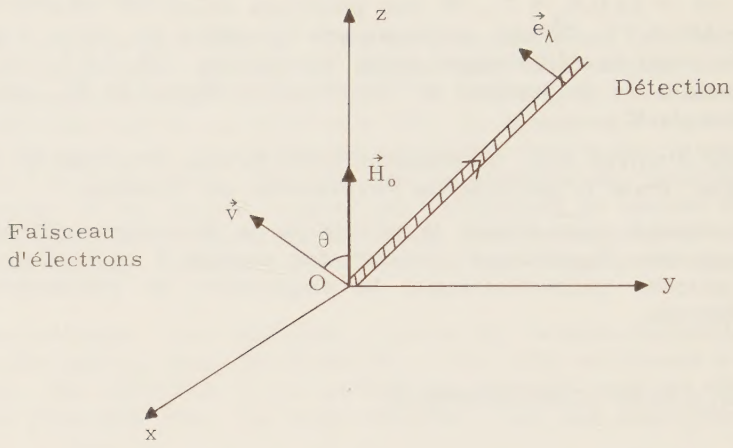


Figure 4 - Principe de l'expérience.

c) La fréquence de la raie optique est $\gg \Gamma$.

Dans ces conditions, largement réalisées, on peut admettre que le système évolue en 3 étapes indépendantes :

- excitation par choc ;
- évolution libre dans l'état excité ;
- désexcitation par émission spontanée.

L'intensité calculée est alors la somme de 2 termes variant lentement avec H_0, et des termes de variation rapide suivants [8] :

$$I_1 = f_1 (Q|_{M_L}| - Q_0, \cos^2\theta) \sin\theta \cos\theta \frac{\gamma(\alpha\Gamma + \beta\Delta E)}{\Gamma^2 + (\Delta E)^2} \qquad \text{si } |M' - M| = 1$$

$$I_2 = f_2 (Q|_{M_L}| - Q_0, \cos^2\theta) \sin^2\theta \frac{(\alpha^2 - \beta^2)\Gamma + 2\alpha\beta\Delta E}{\Gamma^2 + (\Delta E)^2} \qquad \text{si } |M' - M| = 2$$

Il n'y a aucun terme à variation rapide correspondant à $|M' - M| \geqslant 3$.

Les fonctions f_1 et f_2 des sections efficaces (1) d'excitation des sous-niveaux orbitaux M_L sont pour le moment considérées comme des constantes arbitraires.

Les courbes correspondantes sont des courbes d'absorption, de dispersion ou des combinaisons linéaires de ces formes, suivant les orientations respectives du jet et de l'analyseur. La discussion donne les résultats représentés sur le tableau II.

---

(1) $Q|_{M_L}|$.

Tableau II

Observation	$\theta = (\vec{v}, \vec{H}_0)$	$\vec{e}_\lambda$	$\Delta M = 2$	$\Delta M = 1$
$/\!/ \vec{H}_0$	$\neq 0°$	$(\vec{v}, \vec{e}_\lambda) = 0°, 90°$ $(\vec{v}, \vec{e}_\lambda) = 45°, 135°$	Absorption Dispersion	/
	0°	/	/	/
$\perp \vec{H}_0$	90°	0° $(\vec{H}_0, \vec{e}_\lambda) = 45°$ 90°	/ $\frac{1}{2} \times$ max. max.	/ / /
	45°	0° $(\vec{H}_0, \vec{e}_\lambda) = 45°$ 90°	/ $\frac{1}{2} \times$ max. max.	/ max. /
	0°	/	/	/

Remarquons que dans le cas de l'observation dans une direction parallèle à $\vec{H}_0$, lorsque $\vec{e}_\lambda$ varie, seule varie la forme des courbes, non leur amplitude. C'est le contraire dans le cas de l'observation perpendiculaire à $\vec{H}_0$. On voit que, lors de l'excitation longitudinale, aucun croisement n'est observable ; lors de la détection en π, aucun croisement n'est observé.

3/ Influence des cascades

Contrairement à ce qui se passe dans le cas de l'effet Hanle ou de l'excitation par électrons pulsés, les phénomènes de cascade sont ici inobservables (figure 5).

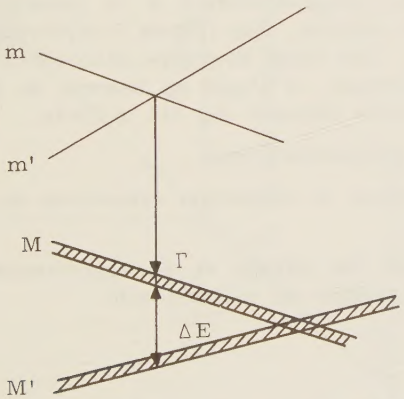


Figure 5 - Influence des cascades.

Supposons que l'ensemble des sous-niveaux (J M) soit peuplé par cascade, grâce aux transitions radiatives (j m) - (J M) ; on n'observera sur les raies issues des (J M) aucune variation spéciale au voisinage d'un point de croisement entre deux sous-niveaux (j m) et (j' m'). En effet, sauf accident, il n'existe dans ce voisinage aucun croisement entre sous-niveaux (J M) et (J' M'). Supposons alors que l'excitation électronique crée, dans l'état supérieur, des grandeurs transversales non nulles en moyenne. Elles seront transférées dans l'état intermédiaire, mais auront alors le temps de décrire plusieurs tours pendant la durée de vie de ce dernier, puisque les sous-niveaux (J M) et (J' M') ont tous des énergies écartées de plus de la largeur naturelle. Donc, lors de l'émission spontanée depuis les états (J M), ces grandeurs transversales ont disparu, et aucun croisement n'apparaît.

Le raisonnement précédent n'est pas valable pour l'effet Hanle, qui est en somme un effet de croisement en champ nul ; c'est justement un cas accidentel où les croisements (j m) - (j' m') et (J M) - (J' M') coïncident (en champ nul).

En résumé, en excitant une vapeur atomique par un faisceau d'électrons lents dirigé obliquement par rapport à $\vec{H}_0$, on pourra, par la méthode de détection optique, déterminer certains points de croisements.

III - EXPERIENCE

1/ Montage

Un exemple est montré sur la figure 6. La cellule à excitation électronique est identique à celles décrites par Pébay [7]. Elle est remplie d'hélium, à une pression de 10^{-2} à 10^{-4} mm Hg, placée au centre d'une paire de bobines de Helmholtz de façon que le faisceau d'électrons fasse un angle choisi avec $\vec{H}_0$. Deux P.M. reçoivent la lumière émise dans deux directions opposées. L'un donne un courant proportionnel à l'intensité de la composante $\vec{e}_\lambda$, l'autre un courant proportionnel à l'intensité de la composante perpendiculaire à la première. Les raies sont isolées par des filtres colorés, des filtres interférentiels, ou un monochromateur à réseau. Les deux courants photoélectriques sont opposés et on mesure leur différence. Il s'agit en somme de la détection optique de Brossel [2]. Plusieurs moyens ont été utilisés :

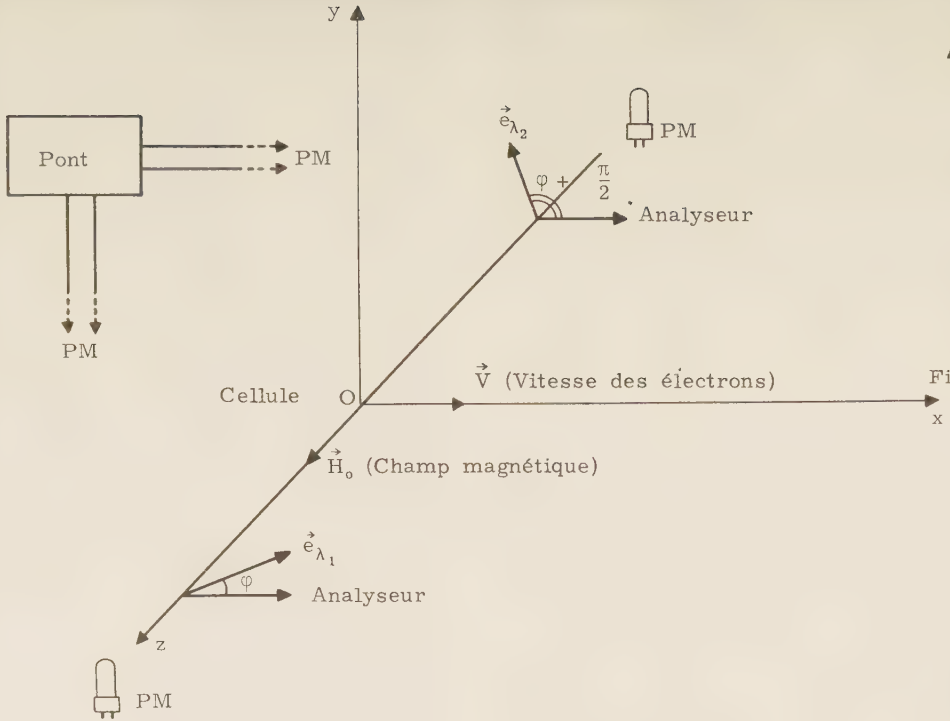
- mesure galvanométrique ;

- amplification et détection synchrone du signal modulé par un moyen quelconque ;

- modulation du champ et enregistrement du signal sur un analyseur multicanaux utilisé en multiéchelle.

2/ Utilisation

On obtient de toute façon des courbes analogues à celles de la figure 7. Si $\vec{e}_\lambda$ est parallèle ou perpendiculaire au faisceau d'électrons,



Croisements $\Delta M = 2$

Figure 6 - Schéma de l'expérience.

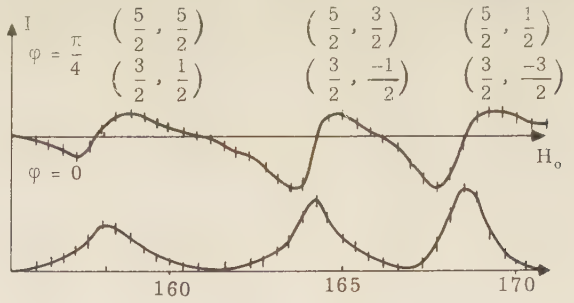


Figure 7 - Croisements de niveaux : état $3\,^3P$ de ^3He.

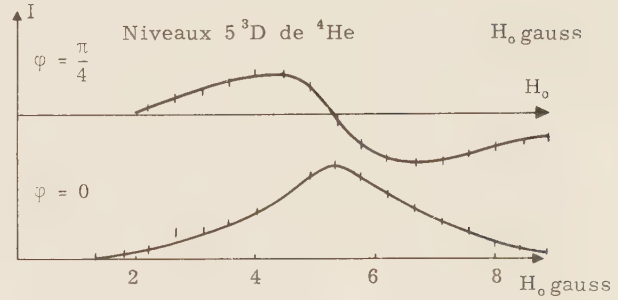


Figure 8 - Croisements de niveaux : état $5\,^3D$ de ^3He.

on a des courbes d'absorption, si $\vec{e}_\lambda$ est à 45°, des courbes de dispersion. L'axe des courbes donne la position du croisement, d'où l'on tire, à l'aide du diagramme Zeeman, la structure des niveaux. Leur largeur à mi-hauteur est proportionnelle à la largeur naturelle du niveau, on en déduit donc la durée de vie.

La figure 8 montre les courbes relatives au $5\,^3D$ de ^4He. La grande largeur naturelle empêche la résolution en 4 croisements.

IV - RESULTATS

1/ Structures fines, structures hyperfines, durées de vie

Le tableau III montre les résultats des mesures [9]. La précision pour les petits intervalles est bien meilleure qu'en optique.

2/ Etude de l'excitation électronique

L'intensité relative des courbes a été calculée suivant les hypothèses de Seaton [10] :

- Interaction atome-électron indépendante du spin
- Excitation assez rapide pour que $\vec{S}$ et $\vec{L}$ n'aient pas le temps de se coupler, c'est-à-dire que les électrons forment des paquets d'ondes de largeur très grande devant la structure du niveau
- Etat fondamental S, couplage SL

On trouve alors que l'excitation électronique crée de l'alignement entre sous-niveaux orbitaux. De plus, les règles de conservation du moment cinétique montrent que les seuls sous-niveaux excités avec une probabilité appréciable sont ceux pour lesquels $M_L = 0$.

Il est alors possible d'achever le calcul présenté en II-2) et d'expliciter les fonctions f_1 et f_2. Les courbes théoriques calculées sont présentées sur les figures 9 et 10. Les points sont expérimentaux, les courbes théoriques. L'accord ainsi obtenu montre la validité des hypothèses de Seaton.

Avant de conclure, il faut signaler que la cause principale d'incertitude de la méthode est la courbure des trajectoires électroniques par le champ magnétique. Il en résulte des signaux parasites qu'on élimine par extrapolation lorsque leur variation n'est pas trop rapide. De toute façon, il est pratiquement impossible d'observer des croisements de niveaux dans des champs de plus de 200 gauss.

En résumé, nous voyons que l'emploi combiné de la méthode des croisements de niveaux et de l'excitation électronique nous a fait obtenir certains renseignements sur les structures de certains niveaux de ^4He et ^3He et sur le mécanisme de l'excitation électronique.

Niveau	λ (Å)	Transition	(^{4}He) : Structure mesurée (MHz)	(^{3}He) : Structure mesurée (MHz)	Durée de vie ($\times 10^{-8}$ s)
$3\,^3P$	3 889	$3\,^3P - 2\,^3S_1$	$3\,^3P_0 - 3\,^3P_1 = 7\,740 \pm 980$ $3\,^3P_1 - 3\,^3P_2 = 658{,}55$	$3\,^3P_2$ (F = 3/2) $- 3\,^3P_2$ (F = 5/2) $= 541 \pm 2$	$9{,}0 \pm 1$
$4\,^3P$	3 188	$4\,^3P - 2\,^3S_1$	$4\,^3P_0 - 4\,^3P_1 = 2\,970 \pm 300$ $4\,^3P_1 - 4\,^3P_2 = 270{,}7 \pm 0{,}2$	$4\,^3P_{2,3/2} - 4\,^3P_{2,5/2} = 224{,}1 \pm 0{,}2$	$16{,}7 \pm 1{,}7$
$5\,^3P$	2 945	$5\,^3P - 2\,^3S_1$	$5\,^3P_0 - 5\,^3P_1 = 1\,500 \pm 200$ $5\,^3P_1 - 5\,^3P_2 = 135{,}5 \pm 0{,}2$	$5\,^3P_{2,3/2} - 5\,^3P_{2,5/2} = 113{,}6 \pm 0{,}5$	$20{,}6 \pm 3$
$6\,^3P$	2 829	$6\,^3P - 2\,^3S$	$6\,^3P_0 - 6\,^3P_1 = 860 \pm 200$ $6\,^3P_1 - 6\,^3P_2 = 78{,}2 \pm 0{,}4$	$6\,^3P_{2,3/2} - 6\,^3P_{2,5/2} = 64{,}0 \pm 0{,}1$	27 ± 5
$7\,^3P$	2 764	$7\,^3P - 2\,^3S_1$	$7\,^3P_1 - 7\,^3P_2 = 48{,}6 \pm 0{,}5$	$7\,^3P_{2,3/2} - 7\,^3P_{2,5/2} = 38{,}9 \pm 0{,}4$	33 ± 10
$8\,^3P$	2 723	$8\,^3P - 2\,^3S_1$	$8\,^3P_1 - 8\,^3P_2 = 32{,}6 \pm 1$	$8\,^3P_{2,3/2} - 8\,^3P_{2,5/2} = 26{,}1 \pm 0{,}3$	40 ± 15
$9\,^3P$	2 696	$9\,^3P - 2\,^3S_1$	$9\,^3P_1 - 9\,^3P_2 = 27{,}8 \pm 0{,}5$		
$3\,^3D$	5 876	$3\,^3D - 2\,^3P$	$3\,^3D_2 - 3\,^3D_3 = 72{,}7 \pm 1$	$3\,^3D_{3,5/2} - 3\,^3D_{3,7/2} = 59{,}3 \pm 0{,}6$	$1{,}3 \pm 0{,}3$
$4\,^3D$	4 471	$4\,^3D - 2\,^3P$	$4\,^3D_2 - 4\,^3D_3 = 35{,}7 \pm 0{,}6$	$4\,^3D_{3,5/2} - 4\,^3D_{3,7/2} = 29{,}2 \pm 0{,}5$	$2{,}9 \pm 0{,}3$
$5\,^3D$	4 026	$5\,^3D - 2\,^3P$	$5\,^3D_2 - 5\,^3D_3 = 20{,}2 \pm 0{,}2$	$5\,^3D_{3,5/2} - 5\,^3D_{3,7/2} = 15{,}3 \pm 0{,}2$	$4{,}2 \pm 0{,}5$
$6\,^3D$	3 820	$6\,^3D - 2\,^3P$	$6\,^3D_2 - 6\,^3D_3 = 12{,}2 \pm 0{,}3$	$6\,^3D_{3,5/2} - 6\,^3D_{3,7/2} = 9{,}2 \pm 0{,}2$	$9{,}4 \pm 1$
$7\,^3D$	3 705	$7\,^3D - 2\,^3P$	$7\,^3D_2 - 7\,^3D_3 = 7{,}2 \pm 0{,}8$	$7\,^3D_{3,5/2} - 7\,^3D_{3,7/2} = 4{,}5 \pm 0{,}4$	$10{,}6 \pm 2$

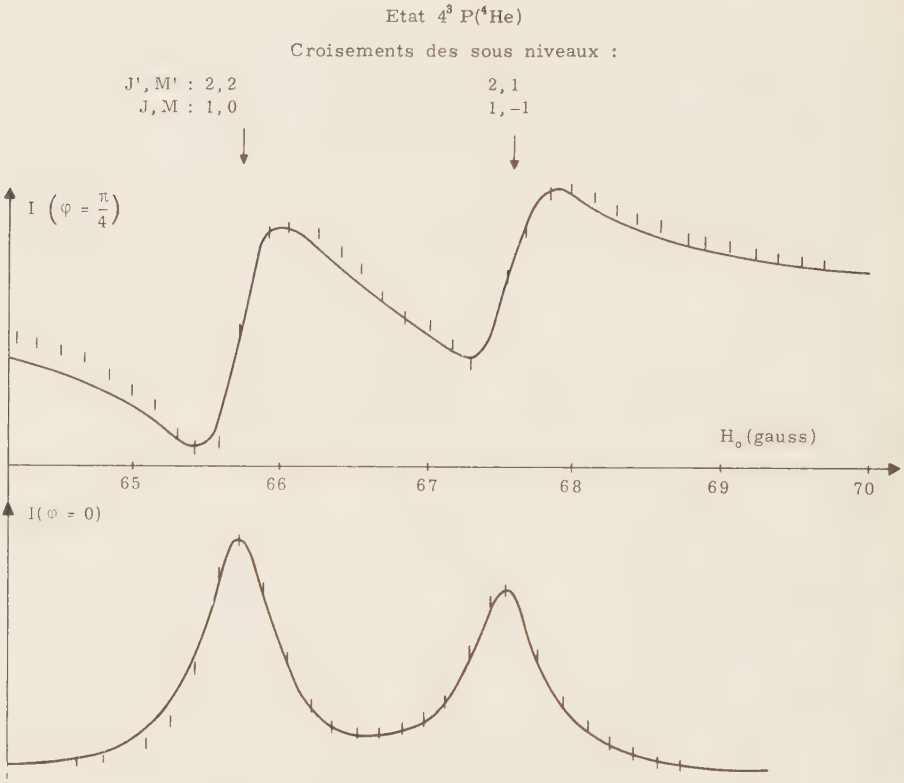


Figure 9 - Croisements de niveaux : état 4^3P de ^{4}He.

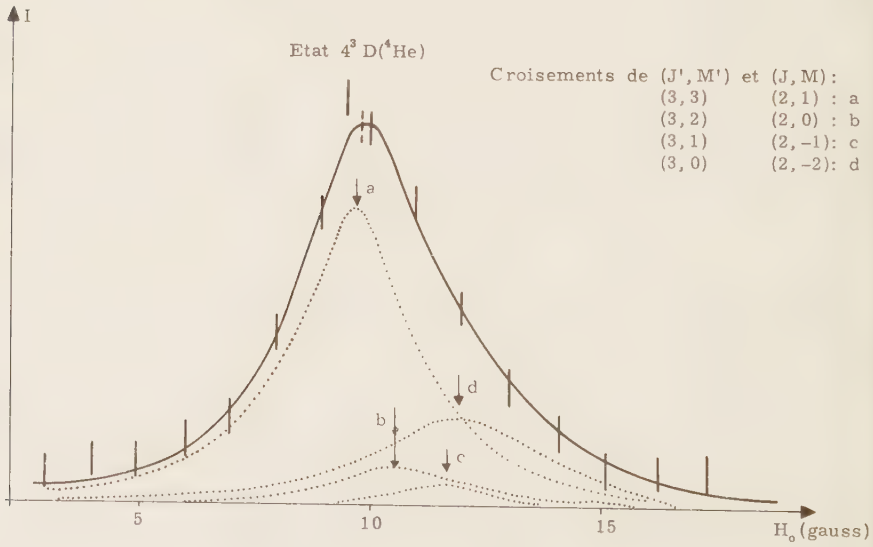


Figure 10 - Croisements de niveaux : état 4^3D de ^{4}He.

BIBLIOGRAPHIE

[1] BROCHARD J., CHABBAL R., CHANTREL H et JACQUINOT P. - *J. Phys. Rad.* **18**, 1957, 596.

[2] BROSSEL J. - Thèse, Paris 1952.

[3] COLEGROVE F.D., FRANKEN P.A., LEWIS R.R. et SANDS R.H. - *Phys. Rev. Letters*, **3**, 1959, 420.

[4] COHEN-TANNOUDJI C. - Thèse, Paris 1962 ; *Ann. de Phys.* **7**, 1962, 423-469.

[5] SKINNER H.W.B. et APPLEYARD E.T.S. - *Proc. Roy. Soc.* **A 117**, 1928, 224.

[6] McFARLAND R. et SOLTYSIK E.A. - *Phys. Rev.* **127**, 1962, 2090.

[7] PEBAY-PEYROULA J.C. - Thèse, Paris 1959 ; *J. Phys.* **20**, 1959, 669-821.

[8] DESCOUBES J.P. - *C.R.* **259**, 1964, 3733.

[9] GALLERON-JULIENNE C. et DESCOUBES J.P. - *C.R.* **261**, 1965, 916.

[10] PERCIVAL I.C. et SEATON M.J. - *Phil. Trans. Roy. Soc.* (London), **A 113**, 1958, 251.

DISCUSSION

J.P. BARRAT : Peut-on observer des anti-croisements par voie électronique ?

J.P. DESCOUBES : En principe oui, mais l'expérience n'a pas encore été tentée.

J. BROSSEL : C'est le principe de la méthode dont a parlé hier A. Kastler pour obtenir une orientation par voie électronique.

H. KLEINPOPPEN : Are there high-frequency transitions available between He n^3P states, and what is the accuracy compared to your level crossing experiments ?

J.P. DESCOUBES : Professor Lamb did magnetic resonance experiments on $2\,^3P$ and $3\,^3P$ in He^4. After operating with several frequencies experiments, he could obtain an accuracy of 10^{-5} on f.s. measurements. No high frequency transitions results are available for more excited levels of He.

In experiments independant of the previous ones, Decomps could obtain some preliminary results on ^1D and ^3D states of He^3 and He^4.